
自动化与深度学习促进的受阻间位sp²碳氢键的选择性活化

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/20117.html>

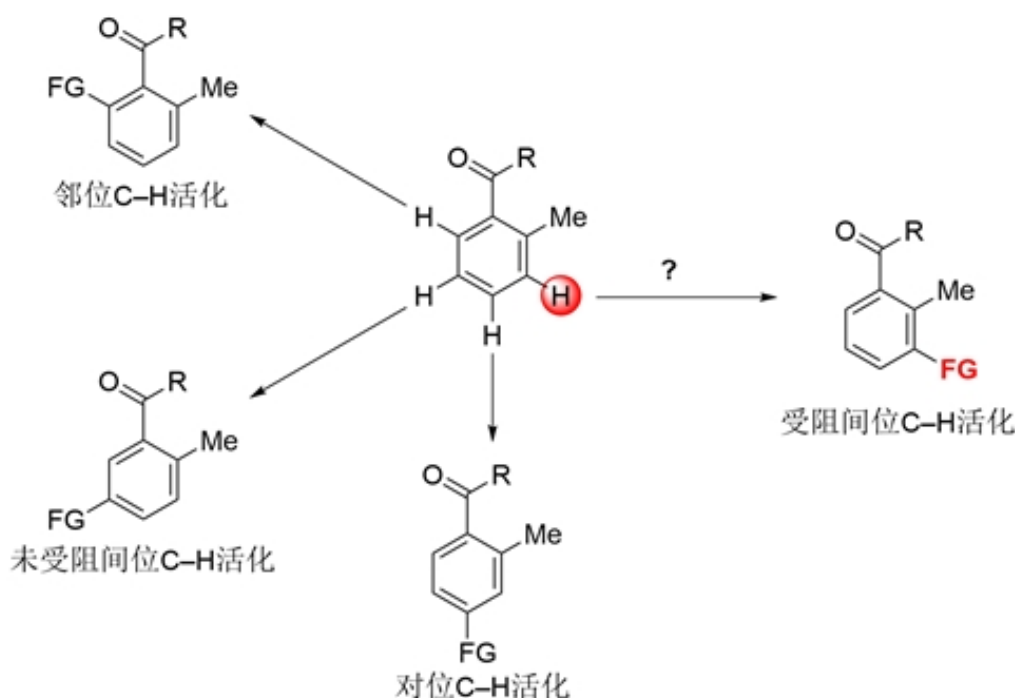
本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

自动化与深度学习促进的受阻间位sp²碳氢键的选择性活化。2022年9月19日，广州实验室廖矿标课题组与中山大学杨跃东课题组合作，在Chem期刊上发表了一篇题为Selective Functionalization of Hindered meta-C – H bond of o-Alkylaryl Ketones Promoted by Automation and Deep Learning的研究论文。

该成果涉及CO₂活化、羧基导向的Pd催化C – H键活化、自动化高通量技术与深度学习算法等诸多领域，首次实现了选择性受阻间位的芳香C – H键活化，并建立了一个表现良好的产率预测模型，为有机化学与人工智能的结合提供了新的范例。廖矿标与杨跃东为该论文通讯作者；邱佳与谢健聪为共同第一作者。

作为有机化学的研究热点之一，已经有非常多的选择性芳基C – H键活化工作在近些年被报道（图1A）。然而，已报道的进展都大量集中于邻位、对位和未受阻间位C – H键活化，受阻间位C – H键的活化却几乎无人问津。为了解决这样一个极具挑战性的问题，广州实验室的廖矿标课题组实现了一个三步一锅的受阻间位C – H键活化反应（图1B）。包括一个光引发的苄位C – H键羧基化，羧基导向的Pd催化C – H键活化，以及最后微波促进的脱羧反应。在进行底物拓展时，采用了自动化高通量实验技术，一共筛选了24种酮和43种芳基三氟硼酸钾，共1032个反应。值得注意的是，其中超过70%的反应都得到了目标产物，这显示了该策略的普适性。但复杂的底物组合，使得影响产率的因素变得非常多样。事实上，预测未知底物的产率，即使是经验丰富的化学家也会感到非常棘手。所以需要建立一个预测模型来降低这个方法学的使用门槛，使它更为实用。最后，通过与中山大学的杨跃东课题组合作，将有机化学与深度学习算法相结合，联合开发了一个产率预测模型（communicative message passing neural network for reaction yield prediction, CMPRY）。通过5折交叉验证（5-fold cross validation, 5cv），CMPRY的预测效果可以达到R² = 0.75以及MAE = 7.2%。而且对于测试集（test set）的预测效果也依然保持良好，为R² = 0.73和MAE = 6.6%。这个结果显示模型具有很好的外延性以及稳定性。

A. 导向芳香C-H活化



B. 此工作:

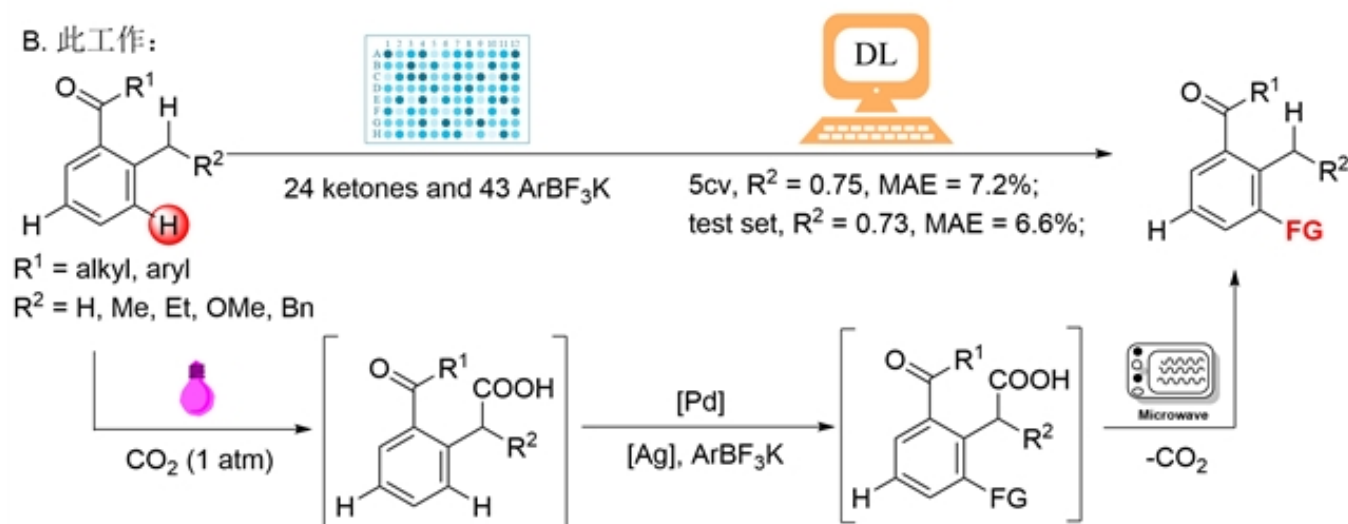


图1：取代芳烃的区域选择性C-H活化策略。A. 导向芳香C-H活化策略；B. 自动化与深度学习促进的受阻间位sp²C-H活化策略。

总而言之，该项研究利用自动化和机器学习实现了一类受阻间位C-H键官能团化的反应。这样一个串联反应涉及到光催化的C-H键羧基化，Pd催化的C-H键芳基化以及微波促进的脱羧反应等。这样一个自动化高通量技术与深度学习算法相结合探索受阻间位C-H活化的模式希望可以促进有机化学与人工智能更好地结合，为传统基础学科的发展注入新的动力。

该研究工作得到了国家自然科学基金委和广州实验室等机构和项目的科研经费支持。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1016/j.chempr.2022.08.015>

作者：廖矿标等 来源：《化学》

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发